

## 明細書

### 窒化アルミニウム接合体及びその製造方法

#### 技術分野

本発明は、半導体製造装置において、半導体ウエハーを載置して処理するためのプレートヒーターや静電チャックとして有用な窒化アルミニウム接合体に関する。詳しくは、2枚の窒化アルミニウム焼結体板が金属層を間に挟んで接合された接合構造を有し、特に半導体ウエハーの処理を均一に行うことが可能であり、且つ、耐久性も良好な窒化アルミニウム接合体に関する。

#### 背景技術

シリコンウエハー等の半導体ウエハーに膜付けやエッチング処理等を施す半導体製造装置において、該半導体ウエハーを載置する台として、ヒーターあるいは電極として作用する金属層が内部に埋め込まれたセラミックの板状焼結体が使用される。たとえば、ヒーターとして金属層を埋め込んだものはプレートヒーターとして、電極を埋め込んだものは、静電チャックとして使用される。また、静電チャックにおいては、電極と共にヒーターとして機能する金属層を埋め込む場合もある。

近年、上記用途に使用するセラミックとして、熱伝導率が良好な窒化アルミニウム焼結体が使用されるようになった。

一方、近年の技術革新による高集積化により益々高精度化が要求されていると共に、処理される半導体ウエハーも大型化し、例えば、表面に膜付けを行う処理においては、大面積の半導体ウエハー表面に均一、均質な薄膜を精度良く作製することが要求され、また、エッチング処理においては、半導体ウエハー上に形成された大面積の各種薄膜を均一にエッチングすることが要求されるようになった。

このような状況下において、前記プレートヒーターや静電チャックとして使用される窒化アルミニウムの板状焼結体においては、埋め込まれている金属層が該焼結体上に載置されている半導体ウエハーから均一な厚みで存在することが必要である。

金属層を埋め込んだ窒化アルミニウムの板状焼結体の製造法としては、金属層が埋め込まれた窒化アルミニウム製グリーンシートを作製し、このグリーンシートを焼成する方法が考えられるが、この方法では、焼結時の寸法変化によって、金属層の断線や変形が生じるという問題がある。従って、一般的には、先ず、板状或いはシート状の焼結体を作製しておき、2つの焼結体を、金属層を介して接合する方法が採用されている。即ち、この方法で得られる窒化アルミニウムの板状焼結体は、2枚の窒化アルミニウム焼結板が金属層を間に挟んで接合された接合体となっており、焼結時の寸法変化による上記問題が有効に回避されている。

ところで、接合法により窒化アルミニウム接合体を製造するときには、2枚の焼結体板の接合に接着剤が使用されている。しかしながら、従来、用いられて板接着剤は、接着温度が高く、接合時の加熱によって焼結体板の変形が起こり、これに伴って金属層に反りが発生するという問題があった。

そこで、接着温度を低下せしめた接着剤を使用することによって反りを改善する方法が提案されている（特許文献1参照）。

上記方法によって、接合体内の金属層の反りはある程度改良することができるが、改善の余地があった。また、窒化アルミニウム層と金属層との間には十分な接合強度が確保されるが、窒化アルミニウム焼結板同士が直接対面している部分での接合強度が、熱履歴により経時的に低下するという問題があった。

特許文献1 特開2000-252045号公報

## 発明の開示

したがって、本発明の目的は、2枚の窒化アルミニウム焼結体板を間に金属層を挟んで接合した窒化アルミニウム接合体において、内部の金属層の反りが極めて低く抑えられ、且つ高い接合強度を有する接合体を得ることを目的とするものである。

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意研究を重ねた。その結果、窒化アルミニウム焼結体板の接合を、特定の圧力をかけながら、特定の温度制御下に2段で加熱することによって、接着剤を用いることなく、高い接合強度を有し且つ内部の金属層の反りが著しく低く抑えられた窒化アルミニウム接合体を得ること

に成功した。さらに、上記方法によって得られた接合体を解析した結果、窒化アルミニウム焼結体の接合界面において、かかる方法に由来する微細な大きさの空孔が、特徴的に残存していることを見出し、本発明を完成するに至った。

即ち、本発明によれば、接着剤を用いることなく互いに接合された2枚の窒化アルミニウム焼結体板と、その接合界面の一部分に形成されている金属層とからなる窒化アルミニウム接合体において、

前記接合体の中心を通る側断面でみて、前記接合界面における前記焼結体板同士が直接対面している直接接合領域には、接合界面に沿っての長さLが平均して0.5～4 μmの空孔が複数存在し、且つ該空孔により非接合部が形成されており、

前記側断面について、下記式(1)：

$$\text{非接合率 } Q = (X / Y) \times 100 \quad \dots (1)$$

式中、Xは、直接結合領域に存在する前記空孔の長さLの合計値で表される前記非接合部の接合界面方向長さであり、

Yは、前記空孔が存在している直接結合領域の長さである、  
により算出される非接合率Qが、平均して0.1～0.5%の範囲にあることを特徴とする窒化アルミニウム接合体（以下、AlN板状接合体ともいう）が提供される。

また、本発明によれば、

2つの窒化アルミニウム焼結体板を用意する工程、

一方の窒化アルミニウム焼結体板の表面の一部分に、厚さ20 μm以下の金属層を形成する工程、

他方の窒化アルミニウム焼結体板を、前記金属層が間に位置するように、前記一方の窒化アルミニウム焼結体板上に重ねて積層体を形成する工程、

前記積層体を、5～100 kg/cm<sup>2</sup>の圧力で加圧しながら、1650～1700℃の温度で0.5～4時間加熱する工程、

次いで、前記圧力による加圧を続けながら、1700℃を越え、1800℃以下の温度で、前記積層体を2～8時間加熱する工程、

とからなることを特徴とする窒化アルミニウム接合体の製造方法が提供される。

本発明のA I N板状接合体は、上記の特定の接合方法に基づいて形成される特徴的な接合界面の構造により、金属層の反りが小さく抑えられていることから、当該金属層に電圧を印加して誘電体に電界を形成する場合など、金属層上の何れの箇所においても均一な電界を形成することが可能である。

また、接着剤を用いずに接合されているため、熱履歴に対しても耐久性があり、より信頼性の高い作動が期待できる。

本発明のA I N板状接合体は、半導体製造装置に使用される静電チャック、プレートヒーターとして、極めて有効に使用される。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明のA I N板状接合体の代表的な態様を示す部分破断斜視図である。

図2は、図1のA I N板状接合体の中心Oを通る側断面の要部を示す図である。

図3は、A I N板状接合体に発生する金属層の反りを説明するための概念図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を図面に従って詳細に説明するが本発明の態様は、かかる図面に示されたものに何ら限定されるものではない。

##### (A I N板状接合体)

図1及び図2において、本発明のA I N板状接合体は、2枚の窒化アルミニウム焼結体板1-a、1-bが、接着剤を用いることなく接合された接合構造を有しており、その接合界面P(図2参照)の一部分に金属層2が存在している。尚、図示されていないが、焼結体板1-a或いは1-bには、スルーホールが形成されており、スルーホールの内部に導体ペーストなどが充填され、金属層2に通電し得るような構造となっている。また、このA I N板状接合体の平面形状は、通常、円形或いは正方形などの矩形状であり、且つ金属層2は、ヒータープレートや静電チャックの用途において、電極、ヒーターなどの回路パターンを形成する

ものであり、図1に示すように単純にベタのパターンで存在する場合もあるし、線状のパターンで存在する場合もある。

また、金属層2は、これに限定されるものではないが、タングステン、モリブデン、白金、チタン、銅等から形成されており、その厚みは、 $20\mu\text{m}$ 以下、特に、 $5\sim 15\mu\text{m}$ の範囲にあることがよい。さらに、金属層2の占める割合は、通常、焼結体板1-a、1-bの接合面に対して $50\sim 90\%$ 、特に $60\sim 80\%$ 程度であるのがよい。

一方、接合前の窒化アルミニウム焼結体板1-a、1-bは、接合後に所期の厚みのAlN板状接合体が得られるようにそれぞれの厚みが適宜決定される。例えば、焼結体板1-a、1-bが同じ厚みであってもよいし、厚みが異なってもよい。一般には、半導体ウエハーを載置する側の焼結体板の厚みが他方よりも薄い方が好ましく、一方の焼結体板の表面（ウエハーが載置される側の表面）からの金属層2の深さが、板状接合体の全厚みに対して $0.1\sim 50\%$ となるように焼結板1-a、1-bの厚みを決定することが好ましい。上記AlN板状接合体の総厚みは、用途によっても多少異なるが、 $1\sim 100\text{mm}$ が一般的である。

本発明のAlN板状接合体は、接着剤を用いることなく、上記窒化アルミニウム焼結体1-a、1-bを間に金属層2を介在させて、後述する2段加熱によって接合させたものであり、このような方法で製造されているため、以下のような特性を有している。

即ち、本発明のAlN板状接合体の接合強度は、ダイシェアテスターによって測定されるシェア強度で評価することができ、焼結体板間で $9.5\sim 11.0\text{kg/mm}^2$ 、特に、 $10.0\sim 11.0\text{kg/mm}^2$ であり、焼結体板-金属層間で、 $2.5\sim 4.0\text{kg/mm}^2$ 、特に、 $3.0\sim 4.0\text{kg/mm}^2$ である。本発明では、このような高い接合強度で、接合体が構成されているため、接着剤を用いて作製された接合体に比べて、異種材料との界面が少なく（接着剤層が存在しない）、従って、熱の繰返し履歴による接合強度の低下が極めて小さいという特性を有している。因みに、本発明のAlN板状接合体は、 $25^\circ\text{C}$ から $350^\circ\text{C}$ までの昇降温による熱履歴を100回繰返しした後における金属層2と窒化アルミニウム焼結体との接合面のシェア強度が、上記熱履歴前のシェア強度に対して

90%以上という極めて良好な耐熱履歴特性を示す。

また、本発明のAlN板状接合体の最大の特徴は、金属層2の反りが著しく少ないという点にある。このような金属層2の反り(W)は、図3に示すように、金属層2に対して直角の切断面において、金属層2の端点を結ぶ線Z(一点鎖線)と金属層2との最大距離(R;  $\mu\text{m}$ )を測定し、これを端点間の長さ(T; mm)により下記式(2):

$$W(\mu\text{m}/10\text{mm}) = (R/T) \times 10 \quad \dots (2)$$

によって求めた値である。本発明のAlN板状接合体は、このような反りが、 $5 \sim 25 \mu\text{m}/10\text{mm}$ 、特に、 $10 \sim 20 \mu\text{m}/10\text{mm}$ という優れた物性を示す。

このような優れた低反り特性は、従来の接着剤を使用するAlN板状接合体では達成できない値であり、接着剤を使用せずに、後述する2段加熱による特殊な接合技術によって初めて達成された値である。

また、本発明の接合体は、後述する特殊な接合技術によって反りの低減を実現させているため、図2に示されているように、接合体の中心Oを通る側断面でみて、接合界面Pにおける前記焼結体板同士が直接対面している直接接合領域には、接合界面に沿っての長さLが平均して $0.5 \sim 4 \mu\text{m}$ の空孔が複数存在しているという特有の接合構造を有している。即ち、このような空孔は、直接結合領域の全体に分布しており、上記長さLが $5 \mu\text{m}$ 以上の大きさは存在しておらず、また、該空孔は球形に近い形状を有しており、その接合界面方向に沿っての長さLと接合界面に対して垂直方向の長さ $L_p$ との比( $L/L_p$ )は、平均して $0.8 \sim 2$ 、特に $1.0 \sim 1.5$ の範囲にある。本発明のAlN板状接合体では、このような空孔の存在によって、焼結体板1-aと1-bとは、部分的に非接合となっており、任意の複数箇所を上記側断面について、下記式(1):

$$\text{非接合率 } Q = (X/Y) \times 100 \quad \dots (1)$$

式中、Xは、直接結合領域に存在する前記空孔の長さLの合計値で表される前記非接合部の接合界面方向長さであり、

Yは、前記空孔が存在している直接結合領域の長さである、

により非接合率Qを算出すると、その値は、平均して $0.1 \sim 0.5\%$ 、特に好

ましくは0.2～0.4%の範囲にある。

尚、上述した空孔の大きさや非接合率等は、板状接合体を上記側断面が現れるように切断し、この切断面を電子顕微鏡で観察することにより測定することができる。

#### (A I N板状接合体の製造方法)

以下、上述した構造を有する本発明のA I N板状接合体の製造方法について説明する。

この製造方法は、予めA I N焼結板を用意し、金属層を間に挟んで2枚のA I N焼結板を、接着剤を用いずに加熱接合するものであるが、概説すると、この加熱接合を、2段での加熱により行うことが顕著な特徴である。即ち、1段目の加熱接合は、上記焼結体の熱膨張が比較的少ない低温領域で行われ、このときには、焼結板相互で部分的な共焼結が生じ、2枚の焼結板は、仮固定される。また、引き続き行われる2段目の加熱接合は、1段目の加熱接合よりも高温領域で行われ、1段目での加熱接合による固定状態が維持されたまま、さらに共焼結を進行させてしっかりとした接合部を形成させるものである。

このように加熱接合を2段で行うと、部分的な共焼結が徐々に進行して最終的な接合部（図2における直接接合領域）を形成するため、成長した共焼結部の間に、微細でほぼ球状の空孔が残存することとなる。このような空孔は、前述したような大きさに接合部の全体にわたってほぼ均等に分布するものであり、該空孔によって、非接合部が形成され、接合界面における前記式（1）で表される非接合率Qが所定の範囲内となる。このように、接着剤を用いずに接合が行われ、このような接合構造を有していることから、本発明のA I N板状接合体は、高い接合強度と耐熱履歴性を有し、しかも、金属層の反りが有効に抑制されたものとなっている。また、接着剤を使用しないため、著しい粒界移動が起こらないことによっても反りが発生し難くなっている。

例えば、窒化アルミニウム焼結体の焼結温度付近で、1段で加熱接合を実施した場合には、接合の進行によって非接合部が残存するが、接合時に接合界面が自由度を持っており、これが冷却される過程の比較的高温で接合界面の固定が起こ

るため、冷却後の接合体に歪ができ易く、反りが発生してしまう。また、接合時において接合界面が自由度を持っていることにより、空孔の移動や変形が起こり易く、大きな空孔が偏って存在したり、平面方向に潰れた形状（接合界面方向の長さLが大きい）の空孔が多く存在し、前述した非接合率Qがかなり大きな値となってしまう、接合強度や耐熱履歴特性の低下が生じてしまうのである。

#### A I N焼結体板 1-a, 1-b の作製：

本発明において、加熱接合すべきA I N焼結体板は、それ自体公知の方法によって作製することができ、例えば、A I N粉末からなる焼成用粉末を有機バインダーと混合して造粒粉末或いはペーストなどの成形用材料を調製し、この成形材料をシート状に成形し、得られたグリーンシートを脱バインダーし、焼成することにより作製することができる。

上記の焼成用粉末には、必要により、Mg, Ca, Srなどのアルカリ土類金属の酸化物や、Y等の希土類元素の酸化物などを焼結助剤として添加することもできる。このような焼結助剤の添加量は、通常、1重量%以下、特に0.5重量%以下である。

また、有機バインダーとしては、これに限定されるものではないが、一般に、ポリビニルブチラル、ポリメチルメタクリレート、カルボキシメチルセルロース、ポリビニルピロリドン、ポリエチレングリコール、酸化ポリエチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリスチレン、ポリアクリル酸などが使用される。このような有機バインダーは、その種類によっても異なるが、一般に、前述した焼成用粉末100重量部当り、0.1乃至30重量部の量で使用される。

また、成形用材料の調製にあたっては、必要により、長鎖炭化水素エーテルなどの分散剤、トルエン、エタノールなどの溶剤、及びフタル酸などの可塑剤を適宜の量で用いることもできる。

上記成形用材料を用いての成形用シート（グリーンシート）の作製は、押出成形法、ドクターブレード法、プレス成形法等の公知の成形法によって行われる。

脱バインダーは、一般に、グリーンシートを空气中で300乃至900℃程度に加熱することにより行われ、焼成は、脱バインダー後のグリーンシートを、不

活性雰囲気中（例えば窒素雰囲気中）、1700乃至1900℃の温度に加熱することにより行われる。焼成時間は、通常、アルキメデス法による相対密度が98%以上となる程度の時間であればよい。

上記のようにして得られたAlN焼結体板は、金属層2と該焼結板との密着性を高め、且つ接着剤を用いずに行われる加熱接合によって十分な接合強度が得られるように、表面粗さRa（JIS B 0601）が、0.1～0.8μm、好ましくは、0.2～0.6μmとなるように研削加工を施すことが好適である。

#### 金属層2の形成：

上記のようにして作製されたAlN焼結体板1-a、1-bの一方に、金属層2を形成する。

かかる金属層2は、例えば前述した金属材料を、所定のマスクを介してのイオンプレーティング等の手段で所定厚み（20μm以下、特に5～15μm）に形成することができる。また、金属材料を適当な有機バインダーや有機溶剤に分散させた導体ペーストを所定パターン形状に焼結体板表面に塗布し、焼き付けることにより、金属層2を形成することも可能である。

#### 加熱接合：

本発明においては、上記のようにして作製された2枚のAlN焼結体板（一方には金属層2が形成されている）を、間に金属層2が存在するようにして重ね合わせ、5～100kg/mm<sup>2</sup>、好ましくは10～30kg/cm<sup>2</sup>圧力で圧接しながら、2段で加熱接合する。尚、この加熱接合は、大気中或いは不活性雰囲気中（窒素雰囲気中）の何れで行うこともできるが、金属材料の酸化を防止するために、不活性雰囲気中で行うことが好ましい。

1段目の加熱接合は、1650～1700℃、好ましくは1650～1680℃の温度で、0.5～4時間、好ましくは1～2時間、加熱が行われる。先に述べたように、この段階での加熱接合は、AlN焼結体の熱膨張が比較的少ない低温領域で行われるものであり、焼結体板相互で部分的な共焼結が生じ、2枚の焼結体板は仮固定される。従って、この段階で加熱接合を停止したとき、2枚の焼結体板同士が接合されている領域でのシヤ強度は、通常、1.0～4.0kg/mm<sup>2</sup>程度とかなり低い。

上記の１段目の加熱接合の後に、前記圧力を保持したまま、２段目の加熱を行うことによって、目的とするＡＩＮ板状接合体が得られる。このときの加熱温度は、１７００℃を越え、１８００℃以下、好ましくは１７５０～１７９０℃の範囲であり、加熱時間は、２～８時間、好ましくは４～６時間である。即ち、この２段目の加熱では、１段目での加熱接合による固定状態が維持されたまま、さらに共焼結が進行して接合部が形成される。このため、２枚の焼結体板が直接接合されている領域には、空孔が分布しており、このような空孔によって非接合部が発生している。しかるに、このような空孔は、ほぼ球状であり、しかも全体としてかなり均一な微細形状であり、前述した非接合率Ｑがかなり小さい範囲にあり、高い接合強度が確保されており、また金属層２の反りも有効に抑制されている。

上記の２段での加熱接合において、１段目の加熱温度が前記範囲よりも高いと、得られる板状接合板においては、金属層２に大きな反りが発生し、かかる接合体自体も大きく沿ってしまう。また、かかる条件で得られる接合体は、空孔の長さの比（ $L/L_p$ ）が本発明に比してかなり大きくなってしまい、接合界面の方向の長さが大きい細長い形状の空孔が多く発生し、非接合率Ｑがかなり大きくなってしまい、接合強度が大きく低下してしまう。

また、１段目の加熱温度が前記範囲よりも低い場合或いは加熱時間が前記範囲よりも短い場合には、仮固定が不十分となり、やはり大きな空孔が多く発生し、非接合率Ｑが大きくなり、接合強度の低下や反りを生じてしまう。

また、１段目の加熱時間が前記範囲より長い場合は、金属層２を形成している金属が焼結体板中に拡散し、接合板内での金属層２の分布が不均一になってしまい、半導体製造装置に使用される静電チャックやプレートヒーターとしての用途に極めて不適當となってしまう。

さらに、２段目の加熱温度が、前記範囲より高い場合にも、金属層２を形成している金属が焼結体板中に拡散し、金属層２の分布が不均一になってしまう。

２段目の加熱温度が前記範囲より低い場合には、共焼結部の成長が不十分となってしまい、十分な接合強度が得られない。即ち、この場合には、当然、前述した非接合率Ｑは、極めて大きな値となってしまう。

また、２段目の加熱時間が上記範囲より短い場合にも、共焼結部の成長が不十

分となって接合強度の低下を生じてしまい、加熱時間が上記範囲より長い場合は、反りが大きくなってしまう。

上記のような２段接合によって得られる本発明のＡＩＮ板状接合板は、反りがなく、しかも金属層が接合板内に均一に分布しており、しかも接合強度が高く、耐熱履歴性にも優れているため、半導体製造装置で使用される静電チャックやプレートヒーターとして、極めて有用である。

### 実施例

以下に実施例、比較例を挙げ本発明の効果をより詳しく説明する。尚、本発明は以下に記述する実施例に限定されるものではないことは言うまでもない。

実施例及び比較例における各種測定は下記の方法によって行なった。

#### (１) 非接合率Ｑ

ＡＩＮ接合体の中心Ｏから外側に向かって、角度９０度間隔で４箇所の切断面を取り、該切断面の焼結板同士の界面を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）を用いて、倍率６００倍で連続的に写真撮影する。この撮影写真を基に、焼結板同士が直接接合されている接合界面に存在する空孔のそれぞれについて、接合界面方向に沿った長さ $L_n$ （ $n=1\sim N$ ； $N$ は界面に存在する空孔の総数）を求め、下記式を用いて非接合率Ｑをそれぞれの切断面について求め、その平均値を示した。

$$\text{非接合率 } Q (\%) = \frac{\sum_{n=1}^N L_n}{Y} \times 100$$

（但し、 $Y$ は、ＳＥＭ観察を行った直接接合領域の総長さである。）

#### (２) 空孔の長さ比（ $L/L_p$ ）

上記それぞれの切断面において、上記空孔の接合界面方向に沿った長さ（ $L$ ）及び接合界面と垂直方向の長さ（ $L_p$ ）とを測定し、その比（ $L/L_p$ ）を求め、その平均値を示した。

#### (３) 金属層の反り（ $W$ ）の測定

ＡＩＮ板状接合体を２分割した各断面について、図３に示すように、金属層の端点を結ぶ線 $Z$ （一点鎖線）より最も離れた金属層の距離（ $R$ ； $\mu m$ ）を測定し、これを端点間の長さ（ $T$ ； $mm$ ）により下記式（２）によって求め、最も大きい

値を金属層の反りとして表示した。

$$W (\mu\text{m}/10\text{mm}) = (R/T) \times 10 \quad \cdots (2)$$

#### (4) 耐熱履歴特性

A I N板状接合体をサーマルショックチャンバー（エスペック（株）製、型式 T S C - 1 0 3 (W)）に入れ、25℃から350℃まで30分で昇温した後、25℃まで30分で冷却する昇降温を100回繰り返す、このような熱履歴前後の接合体の接合界面のシア強度を測定し、下記式で耐熱履歴特性を算出した。

耐熱履歴特性 (%)

$$= \text{熱履歴後のシア強度} \times 100 / \text{熱履歴前のシア強度}$$

#### 実施例 1

直径40mm、厚み6mmのA I N焼結板（（株）トクヤマ、SH-50、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ : 0.02重量%、表面粗さRa: 0.4 $\mu\text{m}$ ）の一方の面に、外周から5mm幅の部分アルミ製マスクで覆い、イオンプレーティング法にて、Ti: 0.2 $\mu\text{m}$ 、W: 1 $\mu\text{m}$ の順に成膜して金属層（厚み: 1.2 $\mu\text{m}$ ）を形成した。

次に、金属層を形成していないA I N焼結板（SH-50）を、上記の金属層が形成された焼結板に、金属層が内側になるように重ねてカーボン製試料治具にて固定し、ホットプレス炉に入れた。その後、荷重300kgf（圧力23.9kg/cm<sup>2</sup>）をかけながら、窒素気流中1650℃で2時間保持した後、昇温速度10℃/分で1750℃まで昇温後、4時間保持した。室温まで冷却後、炉から取り出し、A I N板状接合体を得た。

かかるA I N板状接合体の製造条件及び各種特性を表1、表2に示した。

尚、このA I N板状接合体について金属層の反りWは、12 $\mu\text{m}/10\text{mm}$ であり、接合界面のシア強度は、金属層を含む界面で3.8kgf/mm<sup>2</sup>であり、金属層を含まない界面（焼結板同士が直接接合されている界面）では10kgf/mm<sup>2</sup>であり、さらに耐熱履歴特性は100%であった。また、非接合率Qは0.2%であり、接合界面方向の空孔の長さの平均は1.8 $\mu\text{m}$ であり、また、空孔の長さ比L/L<sub>p</sub>の平均は1.1であった。

## 実施例 2

直径 326 mm、厚み 10 mm の A I N 焼結板（組成等は実施例 1 と同じ）の一方の面の全面に、実施例 1 と同様にして T i 及び W からなる金属層（厚み：1.2  $\mu\text{m}$ ）を形成した。次に、金属層の中心から半径 146 mm の範囲をマスクングして、外周から 17 mm 幅の金属層（T i / W 膜）を、5 vol % フッ酸 / 5 vol % 硝酸 1 : 1 混合溶液を用いて除去した。

次に、金属層が形成されていない A I N 焼結板を、上記の A I N 焼結板に、金属層が内側になるように重ねてカーボン製試料治具にて固定し、ホットプレス炉に入れた。その後荷重 20 t f（圧力 24.0  $\text{kg}/\text{cm}^2$ ）をかけながら、窒素気流中 1690°C で 2 時間保持した後、昇温速度 3°C / 分で 1790°C まで昇温後、4 時間保持した。室温まで冷却後、炉から取り出し、A I N 板状接合体を得た。

かかる A I N 板状接合体の製造条件及び各種特性を表 1、表 2 に示した。

尚、この A I N 板状接合体について金属層の反り W は、17  $\mu\text{m}/10\text{mm}$  であり、接合界面のシア強度は、金属層を含む界面で 3.5  $\text{kgf}/\text{mm}^2$  であり、金属層を含まない界面（焼結板同士が直接接合されている界面）では 10  $\text{kgf}/\text{mm}^2$  であり、さらに耐熱履歴特性は 100% であった。

また、非接合率 Q は 0.2% であり、接合界面方向の空孔の長さの平均は 2.4  $\mu\text{m}$  であり、空孔の長さ比  $L/L_p$  の平均は 1.2 であった。

## 実施例 3 ~ 5

実施例 1 と同様の直径及び厚みを有する A I N 焼結板を用い、加熱接合条件（保持温度、保持時間、荷重）を変えた以外は、実施例 1 と同様の方法で、A I N 板状接合体を得た。

かかる A I N 板状接合体の製造条件及び各種特性を表 1、表 2 に示した。

## 実施例 6

実施例 1 と同じ A I N 焼結板の一方面に、実施例 1 と同様にして、T i（0.2  $\mu\text{m}$ ）及び W（9  $\mu\text{m}$ ）からなる金属層を形成し、実施例 1 と同じ

条件で加熱接合を行って、A I N板状接合体を得た。

かかるA I N板状接合体の製造条件及び各種特性を表1、表2に示した。

尚、このA I N板状接合体について金属層の反りは、 $19\mu\text{m}/10\text{mm}$ であり、接合界面のシエア強度は、金属層を含む界面で $3.1\text{kg}/\text{mm}^2$ であり、金属層を含まない界面（焼結板同士が直接接合されている界面）では $10\text{kg}/\text{mm}^2$ であり、さらに耐熱履歴特性は99%であった。また、非接合率Qは0.2%であり、接合界面方向の空孔の長さの平均は $3.8\mu\text{m}$ であり、空孔の長さ比 $L/L_p$ の平均値は1.2であった。

#### 比較例1

実施例1と全く同様にして、一方の面に金属層（Ti/W）が形成されたA I N焼結板を作製した。

次に、金属層が形成されていないA I N焼結板に、A I N-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>スラリー（A I N：100重量部、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>5重量部、アクリルバインダー：4重量部、長鎖炭化水素エーテル系分散剤：0.5重量部）を接着剤として塗布した後、これを、金属層が形成されている上記の焼結板に金属層が内側になるように重ねてカーボン製試料治具にて固定し、ホットプレス炉に入れた。

その後、荷重300kgf（圧力 $23.9\text{kg}/\text{cm}^2$ ）をかけながら、窒素気流中1650℃で2時間保持した後、昇温速度10℃/分で1750℃まで昇温後、4時間保持した。室温まで冷却後、炉から取り出し、接着剤層で接合されているA I N板状接合体を得た。

得られたA I N板状接合体は、目視でも明らかに碗状に反っていた。また、このA I N板状接合体表面を研削して、平らにした後、測定される金属層の反りは、 $297\mu\text{m}/10\text{mm}$ であった。また、接合界面のシエア強度を測定したところ、金属層を含む界面で $2.0\text{kg}/\text{mm}^2$ であり、金属層を含まない界面（焼結板同士が直接接合されている界面）では $6\text{kg}/\text{mm}^2$ であり、耐熱履歴特性は68%であった。次に非接合率Qを求めたところ、21.1%であり、接合界面方向の空孔の長さの平均は $6.5\mu\text{m}$ であり、また、空孔の長さ比 $L/L_p$ の平均値は4.8であった。

## 比較例 2

実施例 1 と同様の直径及び厚みを有する A I N 焼結板を用い、加熱接合条件（保持温度、保持時間、荷重）を変えた以外は、比較例 1 と同様の方法で、A I N 板状接合体を得た。

かかる A I N 板状接合体の製造条件及び各種特性を表 1、表 2 に示した。

## 比較例 3 ～ 9

実施例 1 と同様の直径及び厚みを有する A I N 焼結板を用い、加熱接合条件（保持温度、保持時間、荷重）を変えた以外は、実施例 1 と同様の方法で、A I N 板状接合体を得た。

かかる A I N 板状接合体の製造条件及び各種特性を表 1、表 2 に示した。

表 1

	焼結 助剤 含有率 %	試料 サイズ mm	表面 粗さ Ra μm	金属 層厚 み μm	接合面の 金属層の 割合 %	接着剤の 有無	接合 温度 1 ℃	接合 時間 1 時間	接合 温度 2 ℃	接合 時間 2 時間	荷 重 t	圧力 kg/cm <sup>2</sup>
実施例 1	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	2	1750	4	0.3	23.9
実施例 2	0.02	φ326×t10	0.4	1.2	80	無	1690	2	1790	4	20	24.0
実施例 3	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	1	1750	2	0.3	23.9
実施例 4	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	1	1750	8	0.3	23.9
実施例 5	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	2	1750	4	1	79.6
実施例 6	0.02	φ40×t6	0.4	9.2	57	無	1650	2	1750	4	0.3	23.9
比較例 1	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	有 <sup>※1</sup>	1650	2	1750	4	0.3	23.9
比較例 2	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	有 <sup>※1</sup>	1850	6	-	-	0.3	23.9
比較例 3	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1750	6	-	-	0.3	23.9
比較例 4	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1800	8	-	-	0.3	23.9
比較例 5	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1600	2	1750	4	0.3	23.9
比較例 6	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	0.2	1750	4	0.3	23.9
比較例 7	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	2	1680	8	0.3	23.9
比較例 8	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	2	1750	0.5	0.3	23.9
比較例 9	0.02	φ40×t6	0.4	1.2	57	無	1650	2	1750	4	0	0

※ 1 : AlN-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

表 2

	反り W μm	シア強度 (含金属層) kg/mm <sup>2</sup>	シア 強度 kg/mm <sup>2</sup>	耐熱履歴 特性 %	非接合率 Q %	空孔の長さ L μm (平均値)	空孔の 長さ比 L/L <sub>T</sub> の平均
実施例 1	12	3.8	10.0	100	0.2	1.8	1.1
実施例 2	17	3.5	10.0	100	0.2	2.4	1.2
実施例 3	13	3.1	10.0	99	0.2	3.4	1.1
実施例 4	18	3.2	10.0	99	0.4	1.5	1.4
実施例 5	18	3.5	10.0	100	0.3	1.5	1.3
実施例 6	19	3.1	10.0	99	0.2	3.8	1.2
比較例 1	297	2.0	6.0	68	21.1	6.5	4.8
比較例 2	285	1.8	6.8	96	8.5	6.1	5.1
比較例 3	250	1.8	5.0	86	12.5	5.2	6.5
比較例 4	288	1.8	5.0	75	12.5	5.1	6.5
比較例 5	285	2.0	3.0	88	11.5	5.6	8.2
比較例 6	244	3.0	6.0	79	11.0	5.6	7.2
比較例 7	28	1.5	2.7	89	22.1	5.4	3.1
比較例 8	89	2.8	2.5	95	30.0	5.8	3.0
比較例 9	350	0.5	0.2	70	52.0	6.2	9.2

## 請求の範囲

1. 接着剤を用いることなく互いに接合された2枚の窒化アルミニウム焼結体板と、その接合界面の一部分に形成されている金属層とからなる窒化アルミニウム接合体において、

前記接合体の中心を通る側断面でみて、前記接合界面における前記焼結体板同士が直接対面している直接接合領域には、接合界面に沿っての長さ $L$ が平均して $0.5 \sim 4 \mu\text{m}$ の空孔が複数存在し、且つ該空孔により非接合部が形成されており、

前記側断面について、下記式(1)：

$$\text{非接合率 } Q = (X/Y) \times 100 \quad \dots (1)$$

式中、 $X$ は、直接結合領域に存在する前記空孔の長さ $L$ の合計値で表される前記非接合部の接合界面方向長さであり、

$Y$ は、前記空孔が存在している直接結合領域の長さである、  
により算出される非接合率 $Q$ が、平均して $0.1 \sim 0.5\%$ の範囲にあることを特徴とする窒化アルミニウム接合体。

2. 前記直接結合領域には、前記長さ $L$ が $5 \mu\text{m}$ 以上の空孔は、実質上存在していない請求項1に記載の窒化アルミニウム接合体。

3. 前記空孔の接合界面方向に沿っての長さ $L$ と接合界面に対して垂直方向の長さ $L_p$ との比( $L/L_p$ )が平均で $0.8 \sim 2$ である請求項1または2に記載の窒化アルミニウム接合体。

4. 前記金属層における反りが $25 \mu\text{m}/10\text{mm}$ 以下である請求項1乃至3の何れかに記載の窒化アルミニウム接合体。

5.  $1 \sim 100\text{mm}$ の厚みを有している請求項1～4の何れかに記載の窒化アルミニウム接合体。

6.  $25^\circ\text{C}$ から $350^\circ\text{C}$ までの昇降温による熱履歴を100回繰り返した後における前記金属層と窒化アルミニウム焼結体板との接合面のシェア強度が、上記熱履歴前のシェア強度に対して90%以上である請求項1～5の何れかに記載の窒化アルミニウム接合体。

7. 2つの窒化アルミニウム焼結体板を用意する工程、

一方の窒化アルミニウム焼結体板の表面の一部に、厚さ  $20\mu\text{m}$  以下の金属層を形成する工程、

他方の窒化アルミニウム焼結体板を、前記金属層が間に位置するように、前記一方の窒化アルミニウム焼結体板上に重ねて積層体を形成する工程、

前記積層体を、 $5\sim 100\text{kg}/\text{cm}^2$  の圧力で加圧しながら、 $1650\sim 1700^\circ\text{C}$  の温度で  $0.5\sim 4$  時間加熱する工程、

次いで、前記圧力による加圧を続けながら、 $1700^\circ\text{C}$  を越え、 $1800^\circ\text{C}$  以下の温度で、前記積層体を  $2\sim 8$  時間加熱する工程、

とからなることを特徴とする窒化アルミニウム接合体の製造方法。

8. 窒化アルミニウム焼結体板の平均表面粗さ  $R_a$  (JIS B 0601)が、 $0.1\sim 0.8\mu\text{m}$  の範囲にある請求項6に記載の窒化アルミニウム接合体の製造方法。

図 1

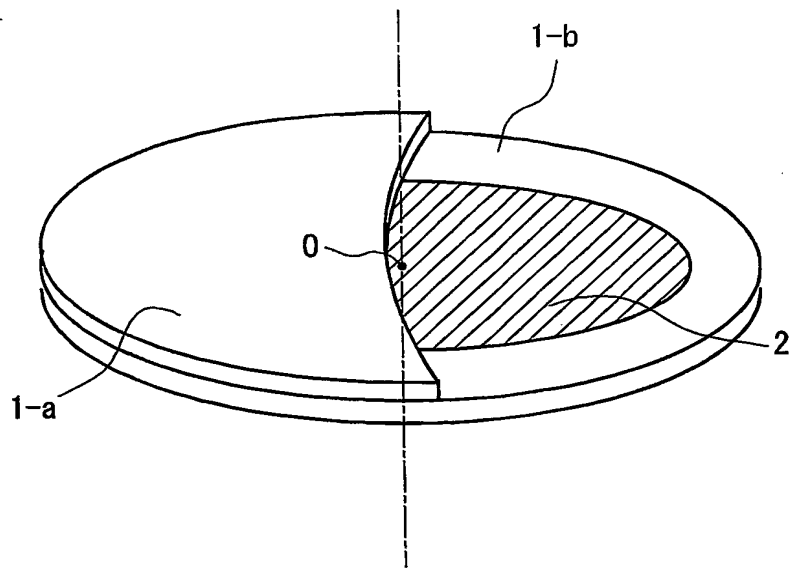


図 2

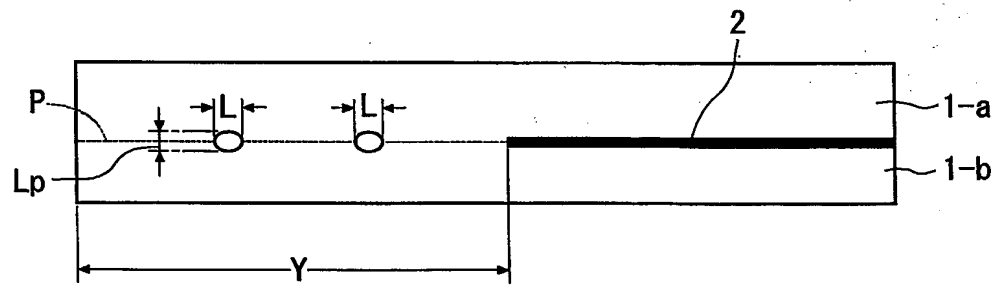
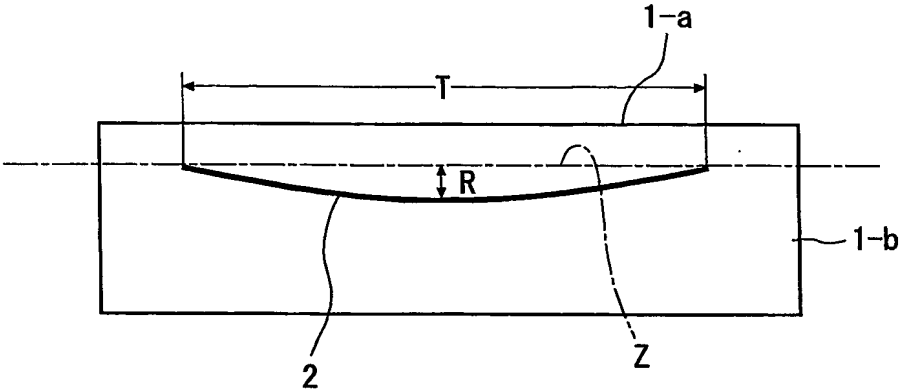


図 3



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008584

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C04B37/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C04B37/00Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2004  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 03/008359 A1 (Ibiden Co., Ltd.), 30 January, 2003 (30.01.03), Claims; page 3, line 21 to page 12, line 20; page 20, line 24 to page 21, line 1; page 25, lines 3 to 6; page 25, lines 19 to 22; page 27, lines 12 to 14; page 30, line 18 to page 36, line 21; Figs. 11, 12 & EP 1418160 A1 & TW 567177 B	1-8
A	JP 2003-100580 A (NGK Insulators, Ltd.), 04 April, 2003 (04.04.03), Par. Nos. [0079] to [0082] (Family: none)	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
20 August, 2004 (20.08.04)Date of mailing of the international search report  
07 September, 2004 (07.09.04)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/008584

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-223256 A (Ibiden Co., Ltd.), 17 August, 2001 (17.08.01), Par. Nos. [0032] to [0041] (Family: none)	1-6
A	JP 11-135906 A (Tokuyama Corp.), 21 May, 1999 (21.05.99), Full text & US 2001-036506 A1 & EP 0913372 A1	7-8

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C04B37/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C04B37/00

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 03/008359 A1 (イビデン株式会社) 2003.01.30, 請求の範囲, 第3頁第21行-第12頁第20行, 第20頁第24行-第21頁第1行, 第25頁第3-6行, 第25頁第19-22行, 第27頁第12-14行, 第30頁第18行-第36頁第21行, FIG. 11, FIG12 & EP 1418160 A1 & TW 567177 B	1-8
A	JP 2003-100580 A (日本碍子株式会社) 2003.04.04, [0079] - [0082] (ファミリーなし)	1-8

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20.08.2004

国際調査報告の発送日

07.9.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

村守 宏文

4 T

9729

電話番号 03-3581-1101 内線 6791

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2001-223256 A (イビデン株式会社) 200 1. 08. 17, [0032] - [0041] (ファミリーなし)	1-6
A	J P 11-135906 A (株式会社トクヤマ) 1999. 0 5. 21, 全文 & US 2001-036506 A1 & EP 0913372 A1	7-8

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**